



## 私の論文

今振り返ってみて、行間にこめた思い、エピソード

# 強度と延性の両立を目指した コア-シェル型組織の形成機構とその制御\*

## Formation Mechanism and Control of Core-shell Type Microstructure Aiming at Both Strength and Ductility

土山聡宏 九州大学 大学院工学研究院  
材料工学部門 教授  
Toshihiro Tsuchiyama

### 1 はじめに

この度、ISIJ Internationalの2020年Vol. 60, No. 12<sup>1)</sup>に投稿させて頂きました論文“Control of Core-shell Type Second Phase Formed via Interrupted Quenching and Intercritical Annealing in a Medium Manganese Steel”に対して、「澤村論文賞」を受賞させて頂く運びとなりました。選考に当たられました編集委員会の関係者ならびに審査委員の皆様方にご場を借りて深く御礼申し上げます。

著者は、九州大学で鉄鋼材料の組織制御に関する研究を行っておりますが、大学の研究として鉄鋼業界に貢献できることは、鉄鋼材料における組織制御のさらなる可能性を示すことだと考えております。本論文はそういう思いから生まれた成果の一つであり、薄鋼板の機械的性質の改善を目指す取り組みをまとめたものです。具体的には、自動車用の先進高強度鋼板、Advanced High Strength Steel (AHSS)<sup>2)</sup>として現在世界的にも注目されている「中Mn鋼<sup>3)</sup>」と「Quenching and Partitioning (Q&P) 鋼<sup>4)</sup>」における組織制御技術の応用を試みた研究ですので、本稿ではまず両鋼種について簡単な解説をさせて頂いた後に、本研究の特徴と成果を述べさせて頂きたく思います。不十分な点多々残されておりますが、本稿と共にISIJ Int.への掲載論文<sup>1)</sup>の方もご覧頂けると幸いです。

### 2 AHSSの現状：第3世代AHSSとしての中Mn鋼とQ&P鋼

鉄鋼材料における強度と延性（全伸び）はFig.1<sup>2)</sup>に示すようにトレード・オフの関係にあり、高強度を求めると必ず延性が低下する傾向にあります。AHSSは、自動車用の骨格部分に使用される部材として開発が進められており、高強度と高加工性を兼ね備えた薄鋼板のことを言います。現在使用されているハイテン（高張力鋼）であるDP（Dual-Phase）鋼やTRIP（Transformation-Induced Plasticity）鋼は「第1世代AHSS」と呼ばれています。一方、高濃度のMnが添加されたオーステナイト鋼は「第2世代AHSS」と呼ばれており、DP鋼やTRIP鋼などのフェライト系の材料に比べると抜群の強度-伸びバランスを有しています。また、その変形の特徴が変形双晶（deformation twins）による高い加工硬化率とそれに伴う高い均一伸びにありますので、TWIP（Twinning-Induced Plasticity）鋼<sup>5)</sup>とも呼ばれています。しかしTWIP鋼は、特性には優れるもののコストや製造性の観点から多くの課題が残されていますので、現在では第1世代AHSSよりも強度-延性バランスに優れ、TWIP鋼よりも低延性側ではあるが高強度を目指した「第3世代AHSS」が本分野における研究の中心となっています。とくに前述の中Mn鋼とQ&P鋼が主な対象となっており、欧米や韓国をはじめ非常に多くの研究者によって当鋼種の開発が進められています。

\* [今回の対象論文]

土山聡宏, 坂本孝之, 田中祥平, 増村拓朗: 「Control of Core-shell Type Second Phase Formed via Interrupted Quenching and Intercritical Annealing in a Medium Manganese Steel」, ISIJ International, Vol.60 (2020), No. 12, pp. 2954-2962 (第32回澤村論文賞受賞)

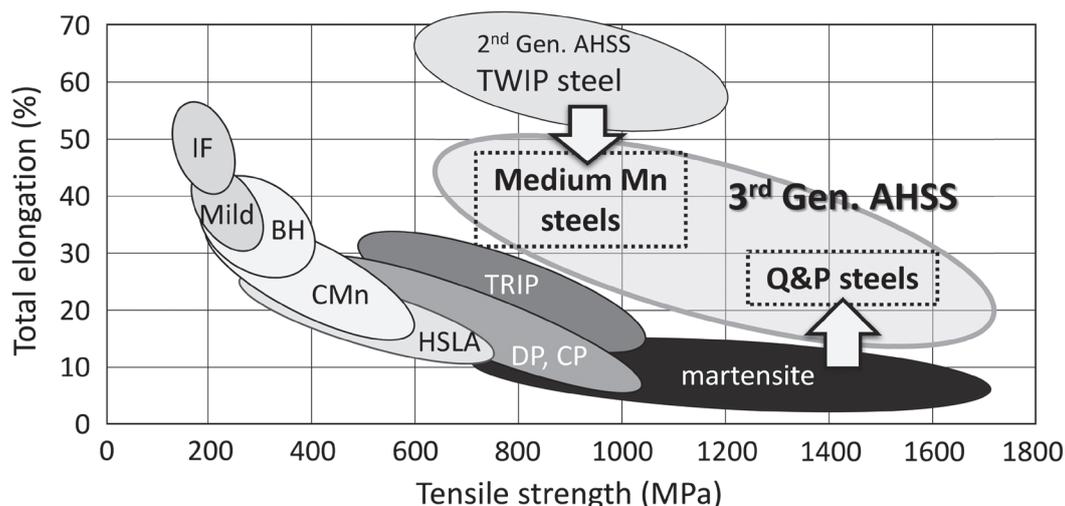


Fig.1 Strength-elongation balance of various high strength steels.

中Mn鋼<sup>3)</sup>は、TWIP鋼のMn量を4~10%程度にまで低減し(TWIP鋼では20~30%Mn程度)、オーステナイト単相組織ではなくオーステナイトとフェライトの二相組織として使用しようとする鋼種です。熱処理はFig.2 (a)に示すように、機械構造用鋼の焼入れ-焼戻しと同様ですが、Mn添加の影響でA<sub>1</sub>点が低下しているため、実施される600℃以上の焼戻し温度では(γ+α)二相域での焼鈍(Intercritical Annealing)となります。二相域焼鈍によりマルテンサイト基地から生成した逆変態オーステナイト粒にはMnとCが高濃度に濃化するため、その後の冷却後もマルテンサイト変態せず、室温まで残留します。その結果、その残留オーステナイトによってTRIP効果が発現し、優れた強度-伸びバランスが発現することになるわけです。ただし問題点として、焼入れ後に600℃もの高温での熱処理を要するため、焼入れで形成された高強度のマルテンサイトの回復が進み、しかもそこで炭素の枯渇も生じるため、基地の強度が大きく低下してしまうという問題点があります(実際はそれを防ぐため強加工を施すことで結晶粒微細化が図られています)。

一方、Q&P鋼<sup>4)</sup>は、化学成分については前述のTRIP鋼に近い鋼ですが、熱処理が特殊です。Fig.2 (b)に示すように、オーステナイト化された鋼に対して、焼入れを行う際に室温まで冷却せず、Ms点とMf点の間で冷却を止め、変態を中断させる処理(Interrupted Quenching)が施されます(本稿では部分焼入れと呼びます)。その後直ちに200~400℃程度の炭素の拡散が容易に生じる温度に加熱して保持することで、焼入れマルテンサイトに固溶していた炭素を、未変態オーステナイト部に分配させます(Partitioning)。その結果、未変態オーステナイト部のMs点が低下して残留オーステナイトとなり、その残留オーステナイトがやはりTRIP効

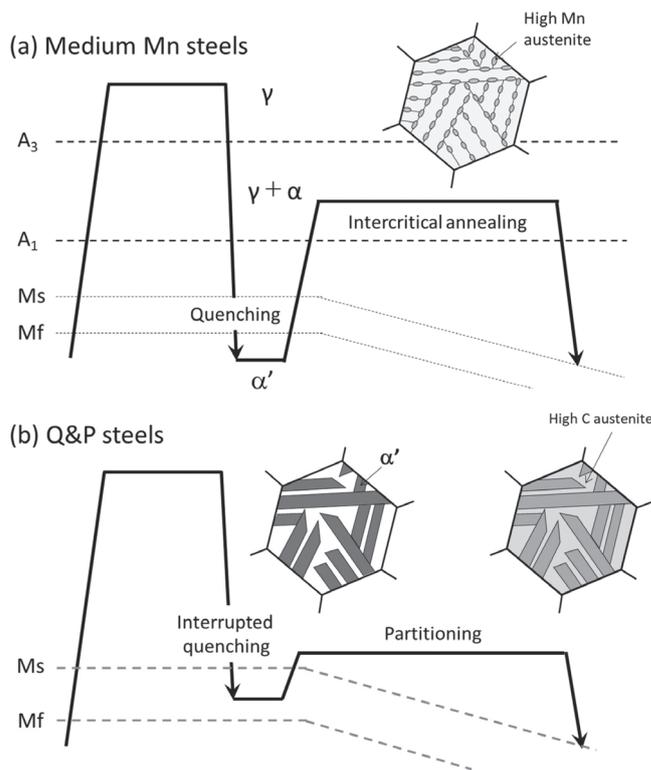


Fig.2 Schematic illustrations showing the typical heat treatments for (a) medium Mn steels and (b) quenching and partitioning (Q&P) steels.

果を発現することで延性を向上させるという仕組みです。しかしこの残留オーステナイトは炭素のみで安定化されたオーステナイトであり、一般的には中Mnオーステナイト鋼における残留オーステナイトほどの安定度はありません。従ってQ&P鋼では、基地の強度は十分高いのですが、通常延性は中Mn鋼に劣ります。以上のことから、概して言えば、第3世代

AHSSの特性において高延性領域を中Mn鋼がカバーし、高強度領域をQ&P鋼がカバーするという形となっています。

### 3 本研究の狙い: コア-シェル型組織による強度と延性の両立

以上、中Mn鋼とQ&P鋼の概略について述べましたが、実用的な観点からは、高強度のマルテンサイトを基地組織として強度を高めると同時に、安定な残留オーステナイトを分散させて延性を確保することが望まれます。そこで著者らは、中Mn鋼とQ&P鋼の特長を併せ持った特性を有する鋼の創製を目指して、Mnの濃化によって安定化させた残留オーステナイトと、焼入れマルテンサイトを共存させることを試みました。両材料のいいところ取りをしようと考えたわけです。そして考案した熱処理がFig.3に示す部分焼入れ-分配処理(Interrupted Quenching and Intercritical Annealing)<sup>6)</sup>です(以後、IQ-IA処理)。用いる試料は中Mn鋼とします。なるべ

くシンプルな組成を選定し、本研究ではFe-5% Mn-1.5% Si-0.1% Cを供試材としました。ここで1.5%のSiは、昇温中や保持中におけるセメンタイトの析出を抑制し、固溶炭素によるオーステナイトの安定化を有効に作用させるために添加されています。この試料をオーステナイト化後、Q&P処理と同様にMs点とMf点の間温度に焼入れます。このとき、Fig.3(a)に示すように、一部オーステナイトが残存し(マルテンサイトブロックに挟まれた領域なので多くは板状)、基地は焼入れマルテンサイトとなっています。未変態オーステナイトとマルテンサイトの量比は部分焼入れする温度に依存します。一般のQ&Pであれば、次に炭素の拡散が可能で、かつマルテンサイト組織の回復を起し難いなるべく低温で分配処理がなされますが、本研究ではマルテンサイト基地の軟化は覚悟の上で、高温の二相域温度域まで昇温して保持を行う点に特徴があります。そうするとFig.3(b)に示すように、2種類の逆変態オーステナイト、すなわち「ラス境界やブロック境界に新たに核生成した粒状オーステナイト」と「未変態オー

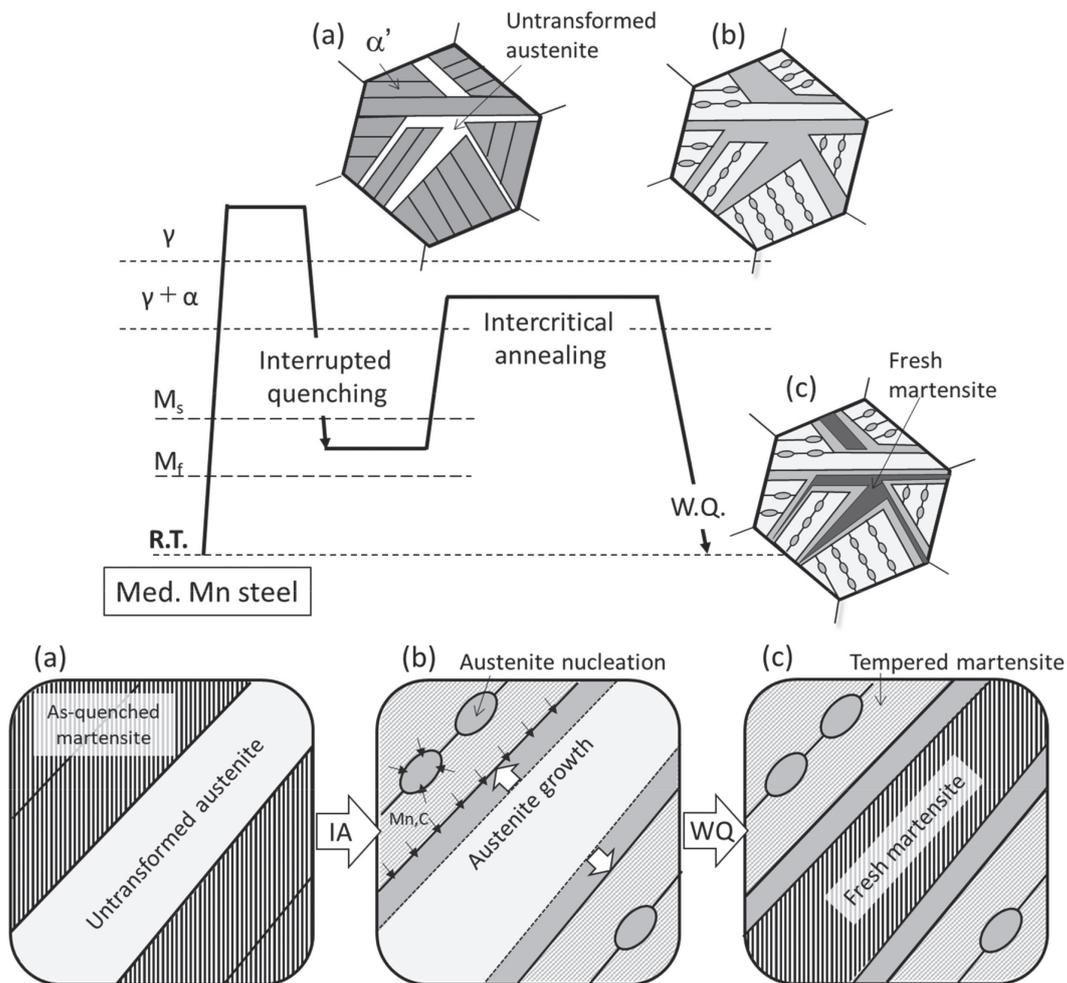


Fig.3 Schematic illustrations showing the heat treatment of interrupted quenching and intercritical annealing (IQ-IA), and the microstructure obtained by IQ-IA process.

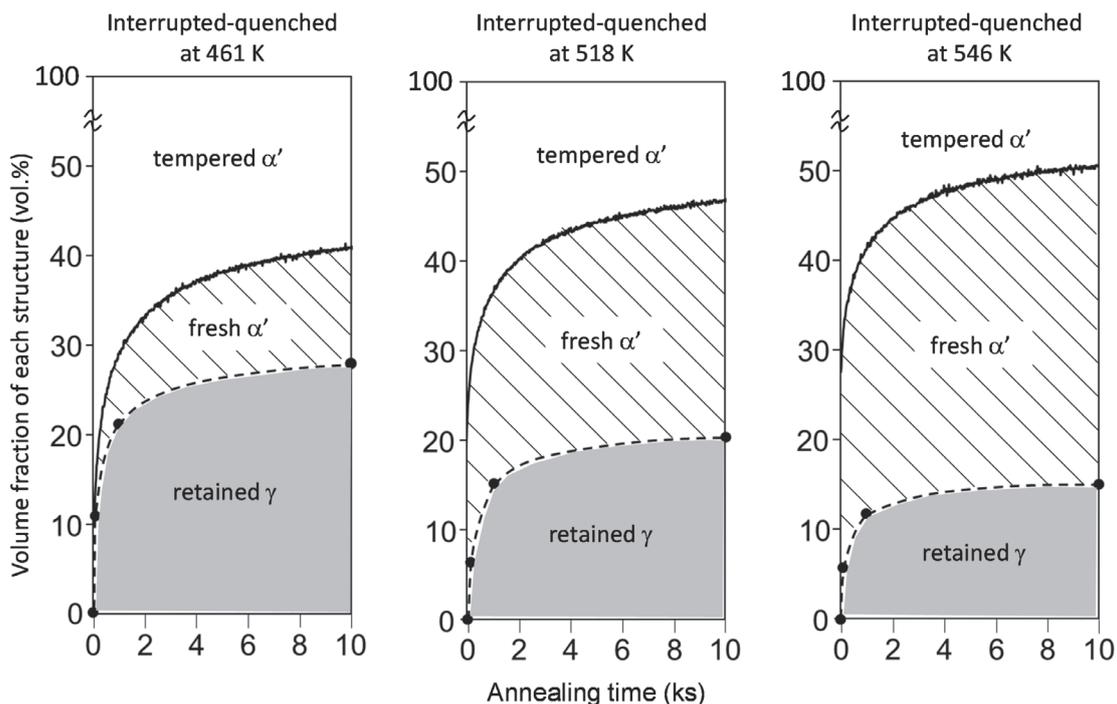


Fig.4 Change in volume fraction of fresh martensite and retained austenite measured after IQ-IA process as a function of IA treatment time<sup>1)</sup>.

ステナイト/マルテンサイト界面が移動することで未変態オーステナイトを取り囲むように生成したシェル状オーステナイト」が新たに形成されます。両者は、いずれもマルテンサイト母相から供給されたMnとCで安定化されており、室温に冷却後も残留します。そして変形時にTRIP効果を発現して高延性に寄与します。一方、二相域焼鈍前から存在していた未変態オーステナイト部については、Mnのオーステナイト中での拡散が遅いため、ほぼ平均Mn組成のまま変動しません(Cは濃化します)。したがってこの部分は室温まで冷却すると、Fig.3(c)のようにマルテンサイト変態して硬化します(これをフレッシュマルテンサイトと言います)。Mnの遅い拡散を利用して、すなわち非平衡状態を利用して組織制御を行うわけです。フレッシュマルテンサイトはDP鋼の場合と同様に、変形時に著しい応力分配を生じ、高い加工硬化率、高い引張強さを引き出す役割を果たします。

このようにIQ-IA処理を行うと、通常の熱処理では形成されないコア-シェル状の組織(Mnで安定化された残留オーステナイトフィルムで取り囲まれたフレッシュマルテンサイト粒)が形成され、強度と延性のいずれに対しても有効に作用させることが可能となります。さらに、本鋼の強度はフレッシュマルテンサイト量で決まりますので、MsとMf間への部分焼入れの温度を変化させるだけで容易に引張強さを調整できるという特徴もあります。以上のようなIQ-IAの特徴を生かして行った組織制御の一例が本受賞論文の内容となり

ます。

## 4 研究成果の要点

受賞論文<sup>1)</sup>で示した代表的な実験結果をいくつか紹介させていただきます。本論文で最も重要な実験結果が、部分焼入れ温度を種々変化させてIQ-IA処理を行った5Mn鋼における組織比とIA処理時間の関係を示したFig.4です。部分焼入れ温度が高くなるほど、初期の未変態オーステナイト量、すなわちフレッシュマルテンサイト量が多くなりますので強度の上昇は期待できます。しかしその反面、オーステナイト/マルテンサイト界面積の減少、および未変態オーステナイト部の炭素濃度低下が生じますので(両者の影響の相違は未評価)、残留オーステナイト量は減少してしまいます。それによる延性の低下は避けられませんので、今後はこのオーステナイトをいかに増大させるか、また安定化させるかが課題です。得られたコアシェル構造のTEM組織およびEDSによるMn濃度分布の一例を、それぞれFig.5およびFig.6に示しています。Fig.5から、転位密度が高いコア部のフレッシュマルテンサイト(fresh α'), それを取り囲むように存在する残留オーステナイトシェル(γ<sub>r</sub>) およびその外部に存在し、転位密度が低い焼戻しマルテンサイト母相(α')が観察されます。またFig.6より、シェル部においてMnが8~10%まで濃化していることが確認できます。コア-シェル

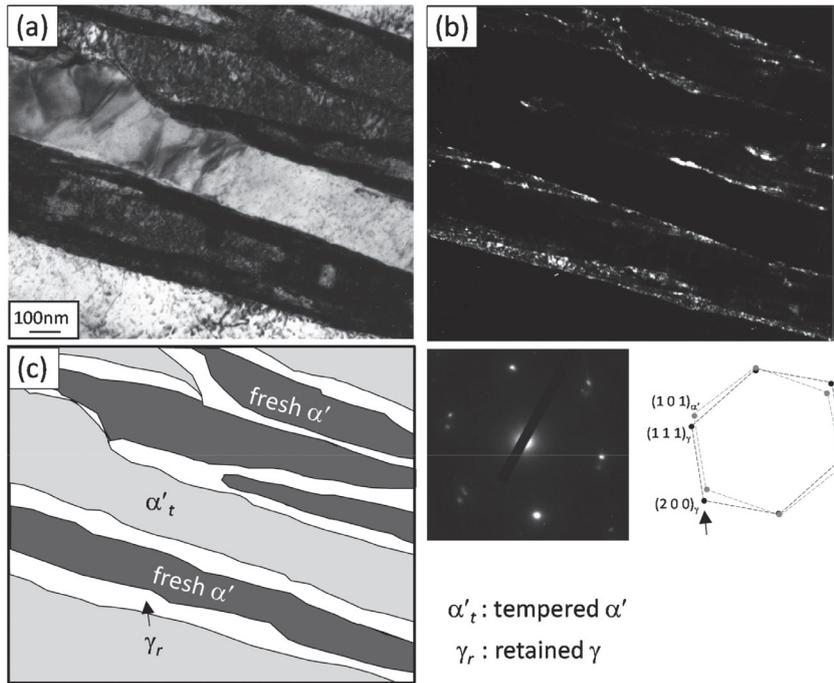


Fig.5 TEM bright- and dark-field images with diffraction pattern of the specimen interrupted-quenched at 461 K and intercritically annealed at 923 K for 10 ks. Schematic illustration corresponds to TEM images<sup>1)</sup>.

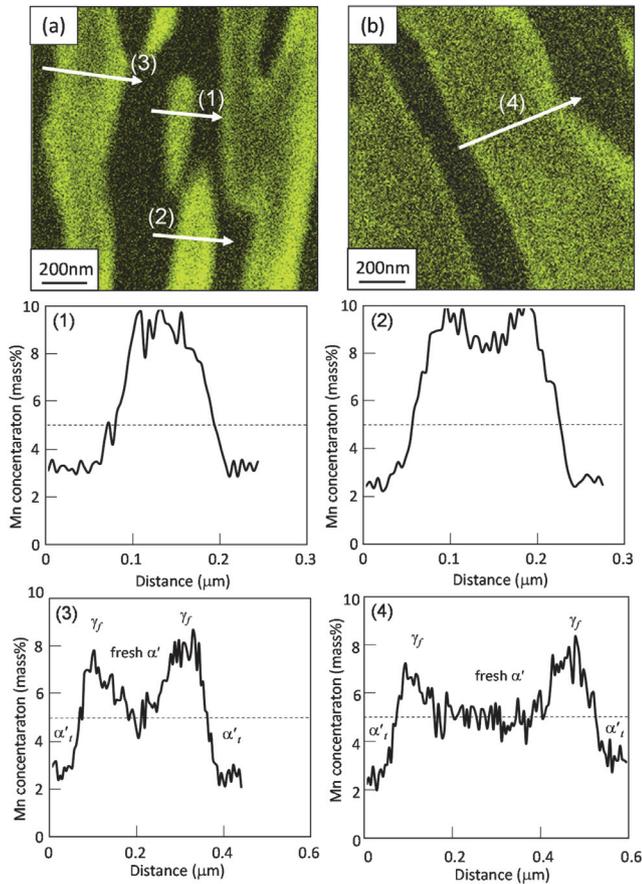


Fig.6 Results of STEM-EDS analysis representing distribution of Mn concentration across the core-shell type second phase in (a) 461 K-IQ and (b) 546 K-IQ specimens<sup>1)</sup>. (Online version in color.)

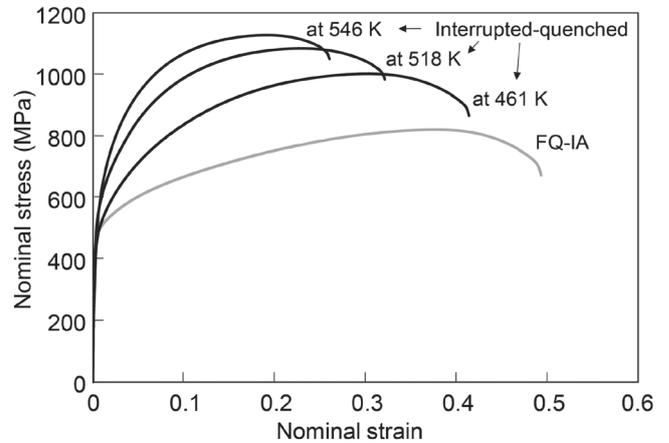


Fig.7 Nominal stress-strain curves of specimens obtained in this study with the IQ-IA process<sup>1)</sup>.

型組織は、Fig.6 (b) における (4) のように、幅の大きな未変態オーステナイトで明瞭に発達する傾向にあります。それでもフレッシュマルテンサイトコアの幅は200~300 nm程度、残留オーステナイトシェルの幅は100 nm以下であり、コア-シェル型組織は非常に小さなサイズの組織であることがわかります。現状ではその形態が板状となっていますが、その形態制御による影響についても今後の研究課題として挙げたいと考えています。最後にFig.7は、得られた材料の応力-ひずみ曲線を示します。部分焼入れ温度を調整することで引

張強度を種々変化させることが可能ですが、やはり強度上昇に伴う延性低下は避けられません。しかし、上述のように、残留オーステナイトの量や安定度、コア-シェル型組織のサイズや形態など、まだ組織制御の余地は残されており、今後の研究により、理想的な組織に近づけていきたいと思えます。そのためには、微小領域での不均一変形の挙動の理解が必要であり、例えばFEMなどの計算工学的手法、中性子回折などの実験的手法を駆使して取り組んでいく必要があると考えています。

## 5 おわりに

論文“Control of Core-shell Type Second Phase Formed via Interrupted Quenching and Intercritical Annealing in a Medium Manganese Steel”の背景や内容の一部を紹介させて頂きました。本研究は、現在も継続しており、今春から修士学生の研究テーマとして新たな試みも開始しています。今後の目標は、コア-シェル型組織のサイズや形態の制御によるさらなる特性の向上と、その構造に起因する不均一変形と延性の関係の明確化が挙げられます。また、「コア-シェル型であること自体の特色」も明確にされていません。すなわち、硬質相の界面での応力集中をシェル部の塑性変形が緩和し、ボイド生成を抑制するという効果も発現していると思っています。それについての根拠を得ることも大きな課題です。いずれにしても、当学生による研究成果が得ら

れましたら、鉄鋼協会講演大会での発表、ならびに鉄と鋼やISIJ Internationalへの投稿を是非検討させて頂きたいと思えます。

## 参考文献

- 1) T. Tsuchiyama, T. Sakamoto, S. Tanaka and T. Masumura : ISIJ Int., 60 (2020) , 2954, <https://doi.org/10.2355/isijinternational.ISIJINT-2020-164>.
- 2) International Iron and Steel Committee on Automotive Applications. Advanced High Strength Steels (AHSS) Application Guidelines., (2005).
- 3) Y.-K. Lee and J. Han : Mater. Sci. Technol., 31 (2015) , 843, <https://doi.org/10.1179/1743284714Y.0000000722>.
- 4) J. Speer, D.K. Matlock, B.C. De Cooman and J.G. Schroth : Acta Mater., 51 (2003) , 2611, [https://doi.org/10.1016/S1359-6454\(03\)00059-4](https://doi.org/10.1016/S1359-6454(03)00059-4).
- 5) O. Grässel and G. Frommeyer : Mater. Sci. Technol., 14 (1998) , 1213, <https://doi.org/10.1179/mst.1998.14.12.1213>.
- 6) T. Tsuchiyama, T. Inoue, J. Tobata, D. Akama and S. Takaki : Scr. Mater., 122 (2016) , 36, <https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2016.05.019>.

(2022年4月15日受付)